


**REPÚBLICA FEDERATIVA DO BRASIL**  
**Ministério do Desenvolvimento, da Indústria e Comércio Exterior.**  
**Instituto Nacional da Propriedade Industrial**  
**Diretoria de Patentes**

**CÓPIA OFICIAL**

**PARA EFEITO DE REIVINDICAÇÃO DE PRIORIDADE**

O documento anexo é a cópia fiel de um  
Pedido de Patente de invenção  
Regularmente depositado no Instituto  
Nacional da Propriedade Industrial, sob  
Número PI 0304252-9 de 25/09/2003.

Rio de Janeiro, 10 de Fevereiro de 2004.

  
**GLÓRIA REGINA COSTA**  
Chefe do NUCAD  
Mat. 00449119

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

**BEST AVAILABLE COPY**

25 SET 17 08 23 009756

Protocolo

Número(21)

## DEPÓSITO

Pedido de Patentes ou de  
Certificado de Adição



PI0304252-9

depósito / /

Espaço reservado para etiqueta (número e data de depósito)

### Ao Instituto Nacional da Propriedade Industrial:

O requerente solicita a concessão de uma patente na natureza e nas condições abaixo indicadas:

#### 1. Depositante (71):

1.1 Nome: COMPANHIA BRASILEIRA DE METALURGIA E MINERAÇÃO e IPT - INSTITUTO DE PESQUISAS TECNOLÓGICAS DO ESTADO DE SÃO PAULO S/A

1.2 Qualificação: entidades brasileiras.

1.3 CNPJ/CPF: 33131541000370,  
60633674000155

1.4 Endereço completo: Rua Pequetita, 111, Vila Olímpia, S. Paulo, Brasil. Cep: 04552-060 e Av. Prof. Almeida Prado, 532 - Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira", Butantã, S. Paulo, São Paulo, Brasil. Cep: 05508-901.

1.5 Telefone:

FAX:

( ) continua em folha anexa

#### 2. Natureza:

☒ 2.1 Invenção

☐ 2.1.1 Certificado de Adição

☐ 2.2 Modelo de Utilidade

Escreva, obrigatoriamente e por extenso, a Natureza desejada: **Patente de Invenção**

#### 3. Título da Invenção, do Modelo de utilidade ou do Certificado de Adição (54):

"PROCESSO DE PRODUÇÃO DE PÓ DE MONÓXIDO DE NIÓBIO, MONÓXIDO DE NIÓBIO, E, CAPACITOR"

( ) continua em folha anexa

#### 4. Pedido de Divisão

do pedido nº

, de / /

#### 5. Prioridade Interna - O depositante reivindica a seguinte prioridade:

Nº de depósito

Data de Depósito

(66)

#### 6. Prioridade - O depositante reivindica a(s) seguinte(s) prioridade(s):

País ou organização de origem	Número do depósito	Data do depósito

( ) continua em folha anexa

**7. Inventor (72):**

( ) Assinale aqui se o(s) mesmo(s) requer(em) a não divulgação  
(art. 6º § 4º da LPI e item 1.1 do Ato Normativo nº 127/97)

7.1 Nome: Solon Yasuhiko Tagusagawa

CPF: 258683228-00

7.2 Qualificação: engenheiro, brasileiro.

7.3 Endereço: Rua Engenheiro Afonso Bauer, 104, São Paulo, SP, Brasil.

7.4 CEP: 05616-080

7.5 Telefone:

( X ) continua em folha anexa

**8. Declaração na forma do item 3.2 do Ato Normativo nº 127/97:**

( ) em anexo

**9. Declaração de divulgação anterior não prejudicial (Período de graça):**  
(art. 12 da LPI e item 2 do Ato Normativo nº 127/97):

( ) em anexo

**10. Procurador (74):**

10.1 Nome e CPF/CNPJ: MOMSEN, LEONARDOS & CIA.

CNPJ 33.146.895/0001-26

10.2 Endereço: Rua Teófilo Otoni, 63 - 10º andar, Rio de Janeiro - RJ.

10.3 CEP: 20090-080

Telefone: (021) 2518-2264

**11. Documentos anexados: (assinale e indique também o número de folhas):**

(Deverá ser indicado o nº total de somente uma das vias de cada documento)

<input checked="" type="checkbox"/>	11.1 Guia de recolhimento	1 fls.	<input checked="" type="checkbox"/>	11.5 Relatório descritivo	14 fls.
<input type="checkbox"/>	11.2 Procuração	fls.	<input checked="" type="checkbox"/>	11.6 Reivindicações	4 fls.
<input type="checkbox"/>	11.3 Documentos de prioridade	fls.	<input checked="" type="checkbox"/>	11.7 Desenhos	2 fls.
<input type="checkbox"/>	11.4 Doc. de contrato de Trabalho	fls.	<input checked="" type="checkbox"/>	11.8 Resumo	1 fls.
<input type="checkbox"/>	11.9 Outros (especificar):				fls.
	11.10 Total de folhas anexadas				22 fls.

**12. Declaro, sob penas da Lei, que todas as informações acima prestadas são completas e verdadeiras:**

**MAURÍCIO LEONARDOS**

Agente de Propriedade Industrial

Matrícula nº 250

Rio de Janeiro, RJ. 25 de Setembro de 2003

pp.MOMSEN, LEONARDOS & CIA. - Matrícula Nº 353

Continuação do quadro 07.  
Inventor

\_Alberto Akikazu Ono; engenheiro, brasileiro.

CPF: 172649358-09

Rua das Avencas, 120, Vila Andréia, Araxá, Minas Gerais, Brasil.

CEP: 38182-194

\_Flávio Beneduce Neto; engenheiro metalurgista, brasileiro.

CPF: 013985578-54

Rua Porto Rico, 95, São Paulo, SP, Brasil.

CEP: 01436-100

\_João Batista Ferreira Neto; engenheiro, brasileiro.

CPF: 090396728-65

Rua Fernão Dias, 264, Apto. 21, São Paulo, SP, Brasil.

CEP: 05427-000

“PROCESSO DE PRODUÇÃO DE PÓ DE MONÓXIDO DE NIÓBIO,  
MONÓXIDO DE NIÓBIO, E, CAPACITOR”

**Descrição abreviada da invenção**

A presente invenção refere-se a um processo de produção de pó de monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ) caracterizado por duas etapas de redução do pentóxido de nióbio ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ), sendo a primeira etapa de redução por hidrogênio do pentóxido de nióbio ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) para dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ), e a segunda etapa de redução de dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) para monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ), através do uso de um material coletor de oxigênio e numa atmosfera conveniente que permita a transferência dos átomos de oxigênio do dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) para o material coletor, sob condições adequadas de tempo e temperatura para a formação do monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ).

A redução parcial de óxidos de nióbio, em uma única etapa, utilizando metais refratários ou reativos e/ou hidretos de metais refratários ou reativos como materiais coletores de oxigênio e em atmosfera que permita transferência de átomos de oxigênio é conhecida, como pode ser observado nas patentes de invenção U.S. Pat. No. 6.391.275, U.S. Pat. No. 6.416.730, U.S. Pat. No. 6.462.934. No entanto, o principal problema da redução parcial de óxidos de nióbio em uma única etapa é a dificuldade na obtenção de um produto com apenas monóxido de nióbio em sua composição, conforme pode ser observado nas patentes de invenção supra citadas. Isto se deve à existência dos vários estados de oxidação que o nióbio pode assumir, bem como aos inúmeros óxidos de nióbio que podem ser formados durante a redução parcial em uma única etapa. A existência de mais de um tipo de óxido de nióbio ou mesmo de nióbio metálico residual, além do monóxido de nióbio, é prejudicial na utilização em capacitores. Além disso, a morfologia final obtida é de difícil controle e usualmente não é a mais adequada para a manufatura de capacitores de alta performance (alta capacitância e baixa corrente de fuga).

A redução do pentóxido de nióbio ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) em monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ) em duas etapas permite o melhor controle de cada uma das etapas de redução, permitindo o uso das matérias primas mais convenientes e o uso dos equipamentos mais adequados para cada etapa do processo, reduzindo com isto os custos de produção. E mais importante, este processo permite o melhor controle das propriedades químicas, físicas e morfológicas do produto obtido.

Além disso, como na segunda etapa de processamento emprega-se dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) e não pentóxido de nióbio ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) como matéria-prima, o material coletor de oxigênio sofre uma menor oxidação, tornando o processo mais eficiente e controlado, e permitindo o emprego de menores quantidades de material coletor.

Com esta rota, o monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ) pode ser reduzido de forma controlada resultando num pó de alta pureza, poroso, com morfologia controlada, de baixa densidade aparente e com elevada superfície específica.

#### Breve descrição das figuras

Figura 1: Fotografia de uma microscopia eletrônica de varredura de um aglomerado de dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ). Aumento de 5.000 vezes.

Figura 2: Fotografia de uma microscopia eletrônica de varredura de um aglomerado de dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ). Aumento de 10.000 vezes.

Figura 3: Fotografia de uma microscopia eletrônica de varredura de um aglomerado de monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ). Aumento de 800 vezes.

Figura 4: Fotografia de uma microscopia eletrônica de varredura de um aglomerado de monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ). Aumento de 6.000 vezes.

## 7

5

10

25

com porosidade adequada que de maneira mais efetiva resulte no dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ).

Exemplos dos pós de pentóxido ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) de nióbio preferenciais são aqueles com tamanhos entre 2,0 milímetros e 0,04 milímetro (10 Mesh Tyler e 325 Mesh Tyler).

A primeira etapa de redução ocorre sob atmosfera de gás hidrogênio ou uma combinação de gás hidrogênio e outros gases inertes em teores variados, como por exemplo, argônio, hélio e nitrogênio, ou qualquer outro gás ou mistura gasosa com potencial redutor adequado, como por exemplo, o monóxido de carbono. A pressão dos gases durante o processo pode variar de 13,3 a 266,6 kPa (100 a 2000 Torr), e preferencialmente de 13,3 a 160 kPa (100 a 1200 Torr).

A temperatura e o período de tempo para a primeira etapa de redução devem ser adequados para garantir a redução do pentóxido de nióbio ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) para dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ). Usualmente, a reação pode ser conduzida entre 700°C e 1500°C, e preferencialmente entre 800°C e 1200°C, para períodos de tempo variando de 15 a 300 minutos, e preferencialmente entre 30 a 180 minutos. Após o término da reação, o produto da reação é resfriado sob a atmosfera de processo até a temperatura ambiente.

A primeira etapa de redução pode ser realizada em fornos do tipo mufla, fornos tipo retorta, fornos de soleira móvel, fornos contínuos de esteira ou qualquer outro tipo de equipamento capaz de atingir as temperaturas necessárias e manter a atmosfera redutora necessária ao processo.

O produto da primeira etapa de redução consiste no dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ). O dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) produzido tem preferencialmente uma morfologia esponjosa, com partículas primárias com 1 micrômetro ou menos e “pescoço” de ligação entre partículas de diâmetro adequado. Este produto possui uma porosidade conveniente que permite atingir altos níveis



9

10

para evitar a introdução de outras impurezas durante o processo.

70

5 O material coletor de oxigênio pode ter qualquer forma ou tamanho. Preferencialmente, o material coletor tem a forma de pó, para que tenha área superficial suficiente para funcionar adequadamente como coletor de oxigênio. Assim sendo, o material coletor pode ser um pó com forma angular, de flocos, de bastonetes, nodular, esponjoso, e/ou uma mistura ou variações destas formas. Preferencialmente, o material coletor é um hidreto de nióbio e/ou nióbio metálico, na forma de grânulos que possam ser facilmente separados por peneiramento do pó de monóxido de nióbio produzido.

10 Uma quantidade suficiente de material coletor deve estar presente para reduzir o dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) para monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ). Preferencialmente, a quantidade de material coletor presente na reação com o dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) é de 1 a 6 vezes a quantidade estequiométrica para redução completa do dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) para monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ).

15 A segunda etapa de reação é realizada em fornos ou reatores comumente utilizados para o processamento de nióbio e/ou tântalo, como por exemplo, fornos elétricos a vácuo. A reação do dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) com material coletor é realizada em temperatura e tempo suficientes para que ocorra a redução do dióxido de nióbio para monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ). A temperatura e o período de tempo do processo dependem de vários fatores, como por exemplo, a quantidade, morfologia e distribuição granulométrica do dióxido de nióbio e de material coletor carregados; e a forma de mistura destes materiais. A temperatura do processo pode ser entre  $1000^\circ\text{C}$  e  $1700^\circ\text{C}$ , e preferencialmente entre  $1200^\circ\text{C}$  e  $1600^\circ\text{C}$ , para períodos de tempo entre 10 minutos e 720 minutos, e preferencialmente entre 30 minutos e 360 minutos.

25 A segunda etapa de redução é realizada em uma atmosfera que permita a transferência dos átomos de oxigênio do dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) para o material coletor de oxigênio. A reação é conduzida em uma atmosfera

contendo gás hidrogênio, e de preferência, apenas gás hidrogênio. Outros gases além do hidrogênio, como o nitrogênio e/ou o argônio e/ou o hélio, podem estar presentes, desde que estes gases não abaxiem o potencial de redução do hidrogênio. A pressão dos gases durante a segunda etapa de redução é preferencialmente entre 100Torr e 2000Torr, e mais preferencialmente entre 500Torr e 1500Torr.

O monóxido de nióbio (NbO) da presente invenção, produzido na segunda etapa de reação, possui uma razão atômica entre o nióbio e oxigênio entre 1:0,6 e 1:1,5 e preferencialmente uma razão atômica entre nióbio de oxigênio entre 1:0,7 e 1:1,1. Colocando de outra forma, o monóxido de nióbio possui uma formulação entre NbO<sub>0,6</sub> e NbO<sub>1,5</sub> e preferencialmente a formulação entre NbO<sub>0,7</sub> e NbO<sub>1,1</sub>.

O produto da segunda etapa de redução consiste no monóxido de nióbio (NbO), com morfologia semelhante ao material de alimentação, o dióxido de nióbio (NbO<sub>2</sub>). Desta forma, controlando a morfologia, porosidade e a distribuição de partículas do dióxido de nióbio (NbO<sub>2</sub>), é possível obter monóxido de nióbio (NbO) com características apropriadas para a manufatura de capacitores.

A vantagem de se utilizar o dióxido de nióbio como matéria prima para a 2ª etapa de redução, reside no fato que a sua temperatura de fusão é significativamente superior à temperatura de fusão do pentóxido de nióbio. Esta maior temperatura de fusão do dióxido de nióbio faz com que a morfologia das partículas permaneça praticamente inalterada durante a reação de redução final, que é realizada a temperatura elevada.

O monóxido de nióbio (NbO) produzido tem preferencialmente uma morfologia esponjosa, com partículas primárias com 1 micrômetro ou menos e “pescoço” de ligação entre partículas de diâmetro adequado. Este produto possui uma porosidade conveniente que permite atingir altos níveis de capacitância, quando transformados em anodos de

capacitor. As imagens de microscopia eletrônica de varredura das figuras 3 e 4 mostram o tipo de monóxido de nióbio (NbO) da presente invenção. Como pode ser observado nestas imagens, o monóxido de nióbio (NbO) da presente invenção possui elevada área superficial específica, e uma estrutura porosa com pelo menos 50% de porosidade. O monóxido de nióbio (NbO) da presente invenção pode ser caracterizado fisicamente como tendo uma área de superfície específica de 0,5 a 20,0 m<sup>2</sup>/g, e preferencialmente de 0,8 a 6,0 m<sup>2</sup>/g.

O monóxido de nióbio (NbO) da presente invenção foi também caracterizado pelas suas propriedades elétricas resultantes de sua fabricação como um anodo de capacitor. O anodo de capacitor pode ser fabricado através da prensagem de pós de monóxido de nióbio (NbO) para formação de anodos, e sinterizando estes anodos a temperaturas apropriadas, e anodizando-os para produzir anodos de capacitor eletrolítico que podem ser testados quanto às suas propriedades elétricas.

Os anodos produzidos pela prensagem de pós de monóxido de nióbio (NbO) da presente invenção tinham massa de 100 mg. Eles foram sinterizados sob vácuo de cerca de  $6,7 \times 10^{-3}$  Pa ( $5,0 \times 10^{-5}$  Torr), a temperatura de 1400°C por 10 minutos. A anodização foi realizada em solução de 0,1% H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (em massa) e a tensão de anodização utilizada foi de 30 Volts. A capacitância após anodização foi medida utilizando-se uma ponte LCR Agilent 4284A, o eletrólito utilizado foi uma solução 18% H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (em massa) e a frequência utilizada foi de 120Hz. A medida de fuga de corrente foi realizada em uma solução 0,1% H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> (em massa), a tensão utilizada foi correspondente a 70% da tensão de anodização, isto é 21Volts, e a corrente foi monitorada até 180 segundos após a aplicação da tensão.

A invenção é explicada mais detalhadamente nos exemplos descritos a seguir:

#### **Exemplo 1:**

Primeira etapa de redução: 200 gramas de pó de pentóxido de

nióbio foram carregados num forno tubular. Gás hidrogênio foi admitido na câmara do forno, e a temperatura do forno foi elevada da temperatura ambiente para 800°C. A carga foi mantida nesta temperatura por 300 minutos, após o que o aquecimento foi desligado. Manteve-se a atmosfera de hidrogênio até a carga atingir a temperatura ambiente, sendo então a câmara do forno pressurizada com nitrogênio antes de retirar-se a carga do forno. O produto desta primeira etapa de reação possuía as seguintes propriedades:

Difração de Raios-X:  $\text{NbO}_2$

Área de superfície específica, método BET:  $3,2 \text{ m}^2/\text{g}$

Porosidade: 83,8%

Segunda etapa de redução: 6 gramas de dióxido de nióbio, produzido na primeira etapa de redução, foram carregados em um cadinho de nióbio, juntamente com 34 g de hidreto de nióbio em pó com tamanho de partícula menor que 0,6 mm e maior que 0,3 mm. O cadinho com a mistura foi carregado na câmara de um forno elétrico a vácuo, a câmara do forno foi evacuada e em seguida pressurizada com gás hidrogênio a uma pressão de 4 kPa (30 Torr) acima da pressão atmosférica. A temperatura foi elevada da temperatura ambiente para a temperatura de reação de 1200°C, e assim mantida por 180 minutos. Terminado o período de 180 minutos, o forno foi desligado e foi feita a evacuação da câmara do forno, até se atingir uma pressão de 0,067 Pa ( $5 \times 10^{-4}$  Torr). Aguardou-se o resfriamento da câmara do forno até a temperatura ambiente antes de se proceder a pressurização com nitrogênio. Após a pressurização, a câmara foi aberta e a carga retirada do forno. O pó de monóxido de nióbio foi separado do pó de material coletor através de peneiramento utilizando-se uma peneira com abertura de malha de 0,2 mm. O produto foi testado, obtendo-se os seguintes resultados:

Difração de Raios-X:  $\text{NbO}$

Área de superfície específica, método BET:  $1,1 \text{ m}^2/\text{g}$

Capacitância: 77.133 CV/g

Fuga de Corrente: 0,2 nA/CV

Análise química (ppm)

C = 59

B < 3

Ca = 11

Cr = 7

Fe < 5

H<sub>2</sub> = 49

Mg = 6

Mn = 4

N<sub>2</sub> = 70

Ni < 10

Si = 154

Ta = 1334

Zr < 2

### Exemplo 2:

Primeira etapa de redução: 250 gramas de pó de pentóxido de nióbio foram carregados num forno tubular. Gás hidrogênio foi admitido na câmara do forno, e a temperatura do forno foi elevada da temperatura ambiente para 800°C. A carga foi mantida nesta temperatura por 150 minutos, após o que o aquecimento foi desligado. Manteve-se a atmosfera de hidrogênio até a carga atingir a temperatura ambiente, sendo então a câmara do forno pressurizada com nitrogênio antes de retirar-se a carga do forno. O produto desta primeira etapa de reação possuía as seguintes propriedades:

Difração de Raios-X: NbO<sub>2</sub>

Área de superfície específica, método BET: 3,5 m<sup>2</sup>/g

Porosidade: 84,4%

Segunda etapa de redução: 180 gramas de dióxido de nióbio, produzido na primeira etapa de redução, foram carregados em um cadinho de

75

15

20

25

$$\text{Ni} < 10$$

Si = 141  
Ta = 1242  
Zr < 2

76

**Exemplo 3:**

5                    Primeira etapa de redução: 1000 gramas de pó de pentóxido de nióbio foram carregados num forno tubular. Gás hidrogênio foi admitido na câmara do forno, e a temperatura do forno foi elevada da temperatura ambiente para 800°C. A carga foi mantida nesta temperatura por 90 minutos, após o que o aquecimento foi desligado. Manteve-se a atmosfera de hidrogênio até a carga atingir a temperatura ambiente, sendo então a câmara do forno pressurizada com nitrogênio antes de retirar-se a carga do forno. O produto desta primeira etapa de reação possuía as seguintes propriedades:

Difração de Raios-X:  $\text{NbO}_2$

Área de superfície específica, método BET: 7,0 m<sup>2</sup>/g

15                   Porosidade: 80,4%

20                   Segunda etapa de redução: 890 gramas de dióxido de nióbio, produzido na primeira etapa de redução, foram carregados em um cadinho de nióbio, juntamente com 5000 g de hidreto de nióbio em pó com tamanho de partícula menor que 0,6 mm e maior que 0,3 mm. O cadinho com a mistura foi carregado na câmara de um forno elétrico a vácuo, a câmara do forno foi evacuada e em seguida pressurizada com gás hidrogênio a uma pressão de 4 kPa (30 Torr) acima da pressão atmosférica. A temperatura foi elevada da temperatura ambiente para a temperatura de reação de 1200°C, e assim mantida por 360 minutos. Terminado o período de 360 minutos, o forno foi  
25                   desligado e foi feita a evacuação da câmara do forno, até se atingir uma pressão de 0,067 Pa ( $5 \times 10^{-4}$  Torr). Aguardou-se o resfriamento da câmara do forno até a temperatura ambiente antes de se proceder a pressurização com nitrogênio. Após a pressurização, a câmara foi aberta e a carga retirada do forno. O pó de monóxido de nióbio foi separado do pó de material coletor



através de peneiramento utilizando-se uma peneira de abertura de malha de 0,2 mm. O produto foi testado, obtendo-se os seguintes resultados:

Difração de Raios-X: NbO

Área de superfície específica, método BET: 1,1 m<sup>2</sup>/g

Capacitância: 91.737 CV/g

Fuga de Corrente: 0,2 nA/CV

Análise química (ppm)

C < 30

B < 3

Ca = 6

Cr < 4

Fe < 5

H<sub>2</sub> = 243

Mg = 4

Mn = 3

N<sub>2</sub> < 10

Ni < 10

Si = 145

Ta = 1357

Zr < 2

#### Exemplo 4:

Primeira etapa de redução: 500 gramas de pó de pentóxido de nióbio foram carregados num forno tubular. Gás hidrogênio foi admitido na câmara do forno, e a temperatura do forno foi elevada da temperatura ambiente para 900°C. A carga foi mantida nesta temperatura por 150 minutos, após o que o aquecimento foi desligado. Manteve-se a atmosfera de hidrogênio até a carga atingir a temperatura ambiente, sendo então a câmara do forno pressurizada com nitrogênio antes de retirar-se a carga do forno. O produto desta primeira etapa de reação possuía as seguintes propriedades:

Difração de Raios-X:  $\text{NbO}_2$

Área de superfície específica, método BET:  $1,6 \text{ m}^2/\text{g}$

Porosidade: 77,0%

Segunda etapa de redução: 6 gramas de dióxido de nióbio,

- 5 produzido na primeira etapa de redução, foram carregados em um cadinho de nióbio, juntamente com 34 g de hidreto de nióbio em pó com tamanho de partícula menor que 0,6 mm e maior que 0,3 mm. O cadinho com a mistura  
foi carregado na câmara de um forno elétrico a vácuo, a câmara do forno foi  
evacuada e em seguida pressurizada com gás hidrogênio a uma pressão de 4  
kPa (30 Torr) acima da pressão atmosférica. A temperatura foi elevada da  
temperatura ambiente para a temperatura de reação de  $1300^\circ\text{C}$ , e assim  
mantida por 180 minutos. Terminado o período de 180 minutos, o forno foi  
desligado e foi feita a evacuação da câmara do forno, até se atingir uma  
pressão de  $0,067 \text{ kPa}$  ( $5 \times 10^{-4}$  Torr). Aguardou-se o resfriamento da câmara do  
forno até a temperatura ambiente antes de se proceder a pressurização com  
nitrogênio. Após a pressurização, a câmara foi aberta e a carga retirada do  
forno. O pó de monóxido de nióbio foi separado do pó de material coletor  
através de peneiramento utilizando-se uma peneira com abertura de malha de  
0,2 mm. O produto foi testado, obtendo-se os seguintes resultados:

20

Difração de Raios-X:  $\text{NbO}$

Área de superfície específica, método BET:  $1,2 \text{ m}^2/\text{g}$

Capacitância: 91.600 CV/g

Fuga de Corrente: 0,3 nA/CV

## REIVINDICAÇÕES

79

1. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, caracterizado pelo fato de compreender duas etapas de redução do pentóxido de nióbio, sendo a primeira etapa de redução por hidrogênio do pentóxido de nióbio para dióxido de nióbio, e a segunda etapa de redução de dióxido de nióbio para monóxido de nióbio, através do uso de um material coletor de oxigênio e numa atmosfera que permita a transferência dos átomos de oxigênio do dióxido de nióbio para o material coletor, podendo o material coletor ser um metal refratário ou metal reativo, ou hidreto de metal refratário ou de metal reativo.

2. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de conduzir a primeira etapa de redução entre 700°C e 1500°C, e preferencialmente entre 800°C e 1200°C, para períodos de tempo variando de 15 a 300 minutos, e preferencialmente entre 30 a 180 minutos.

3. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de conduzir a primeira etapa de redução sob atmosfera de gás hidrogênio ou uma combinação de gás hidrogênio e outros gases inertes em teores variados, como por exemplo, argônio, hélio e nitrogênio.

4. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de conduzir a primeira etapa de redução sob atmosfera de monóxido de carbono ou qualquer outra mistura de gases com poder redutor adequado.

5. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de produzir na primeira etapa de redução o dióxido de nióbio com estrutura micro-porosa, com superfície específica entre 0,5 m<sup>2</sup>/g e 20 m<sup>2</sup>/g.

6. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de

acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de produzir na primeira etapa de redução o dióxido de nióbio com estrutura micro-porosa, com porosidade mínima de 41 por cento.

7. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de produzir na primeira etapa de redução o dióxido de nióbio com estrutura micro-porosa, com baixo teor residual de pentóxido de nióbio.

8. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de utilizar o dióxido de nióbio com área de superfície específica entre 0,5 e 20 m<sup>2</sup>/g na segunda etapa de redução.

9. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de utilizar o dióxido de nióbio com porosidade de no mínimo 41 por cento na segunda etapa de redução.

10. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de utilizar como material coletor de oxigênio na segunda etapa de redução o nióbio metálico e suas ligas, e/ou o hidreto de nióbio e suas ligas.

11. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de utilizar como material coletor de oxigênio na segunda etapa de redução o tântalo metálico e suas ligas, e/ou hidreto de tântalo e suas ligas.

12. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de permitir a transferência dos átomos de oxigênio na segunda etapa de redução pelo gás hidrogênio, podendo conter outros gases que não abaixem o potencial de redução do hidrogênio.

13. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de

acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de utilizar uma mistura de gás hidrogênio e nitrogênio de tal forma a propiciar uma dopagem do monóxido de nióbio formado.

5 14. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de conduzir uma segunda etapa de redução entre 1000°C e 1700°C, e preferencialmente entre 1200°C e 1600°C, para períodos de tempo entre 10 e 720 minutos, e preferencialmente entre 30 e 360 minutos.

10 15. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de produzir o monóxido de nióbio não contendo residuais detectáveis de dióxido de nióbio ou nióbio metálico por difração de raios X.

15 16. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de produzir o monóxido de nióbio na segunda etapa de redução com morfologia semelhante ao do dióxido de nióbio.

20 17. Processo de produção de pó de monóxido de nióbio, de acordo com a reivindicação 1, caracterizado pelo fato de produzir o monóxido de nióbio na segunda etapa de redução com uma razão atômica entre o nióbio e oxigênio entre 1:0,6 e 1:1,5 e preferencialmente uma razão atômica entre nióbio e oxigênio entre 1:0,7 e 1:1,1.

25 18. Monóxido de nióbio, caracterizado pelo fato de ser produzido como definido na reivindicação 1, apresentando teor residual de até 5 por cento de dióxido de nióbio.

19. Monóxido de nióbio, caracterizado pelo fato de ser produzido como definido na reivindicação 1, apresentando teor residual de até 5 por cento de nióbio metálico.

20. Monóxido de nióbio, caracterizado pelo fato de ser produzido como definido na reivindicação 1, apresentando teor residual de até

5 por cento de dióxido de nióbio e teor residual de até 5 por cento de nióbio metálico.

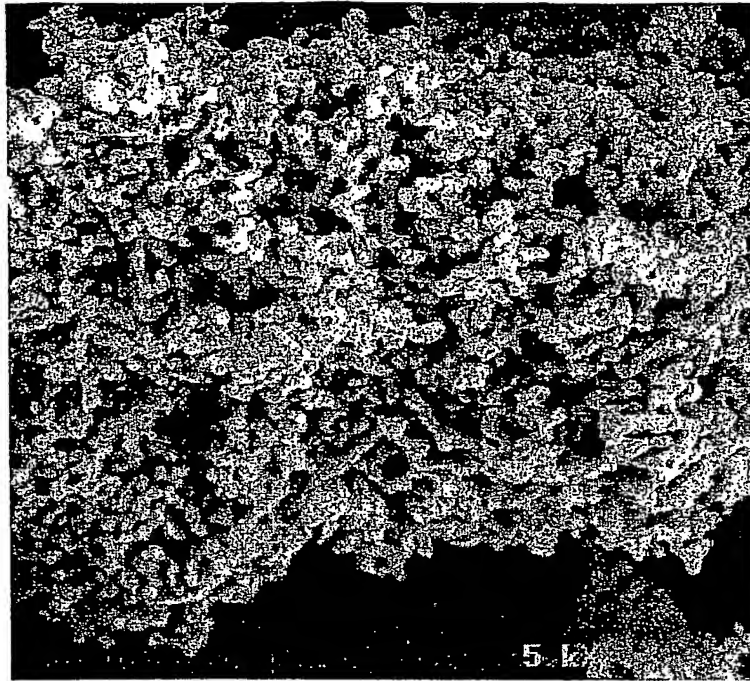
JD

21. Monóxido de nióbio, caracterizado pelo fato de ser produzido como definido na reivindicação 1, apresentando uma área de superfície específica entre 0,5 e 20,0 m<sup>2</sup>/g, preferencialmente de 0,8 a 6,0 m<sup>2</sup>/g.

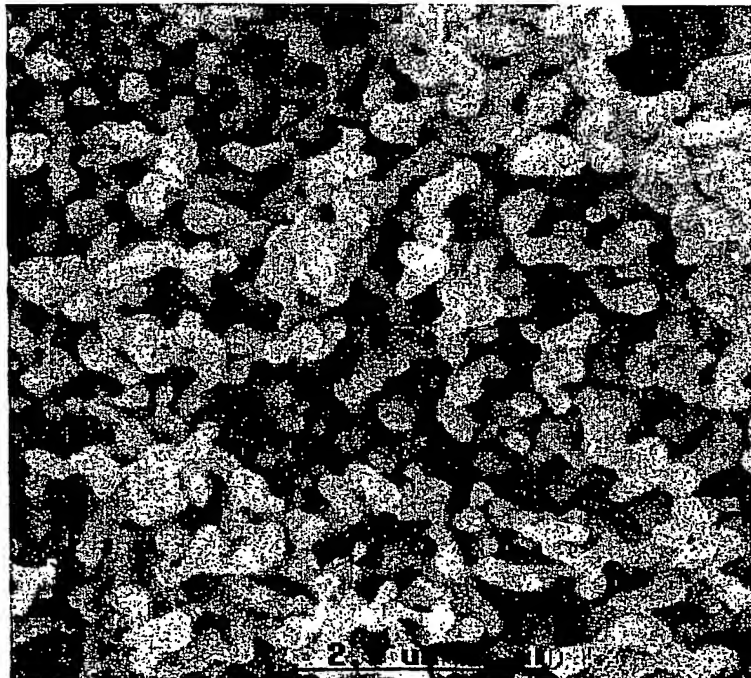
22. Monóxido de nióbio, caracterizado pelo fato de ser produzido como definido na reivindicação 1, apresentando uma estrutura micro-porosa com pelo menos 41 por cento de porosidade.

23. Capacitor, caracterizado pelo fato de ser manufaturado utilizando o monóxido de nióbio produzido como definido na reivindicação 1, apresentando uma capacitância entre 50.000 CV/g e 200.000 CV/g.

24. Capacitor, caracterizado pelo fato de ser manufaturado utilizando o monóxido de nióbio produzido como definido na reivindicação 1, apresentando uma fuga de corrente inferior a 1,0 nA/CV.

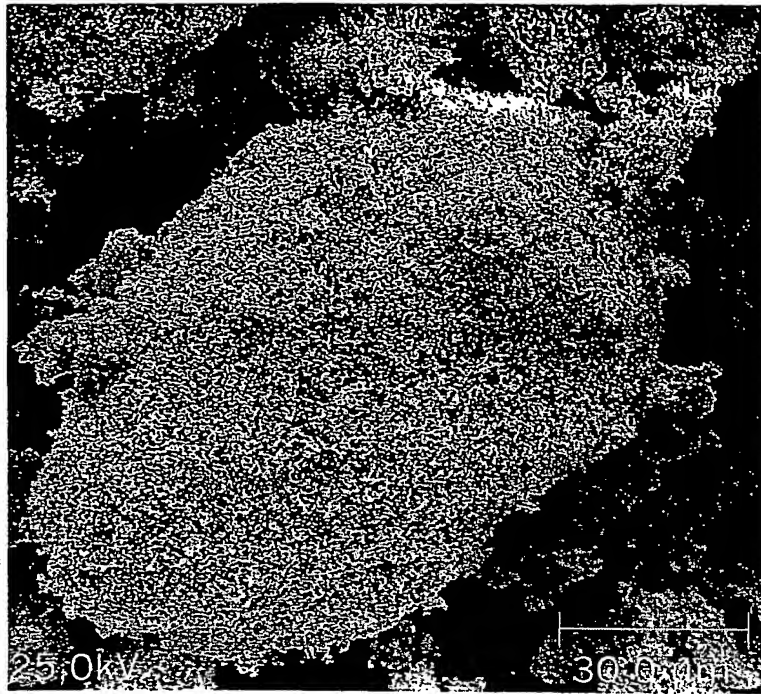


**Figura 1.**

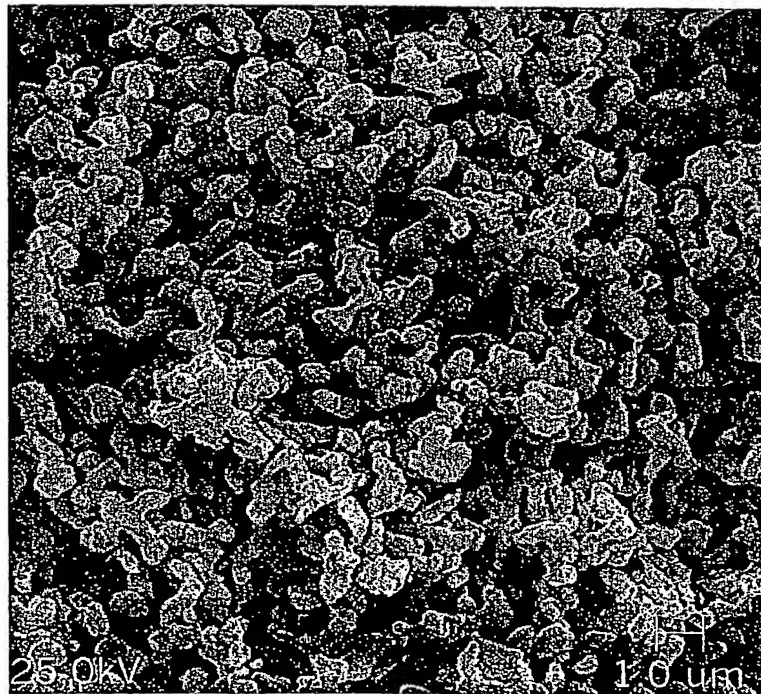


**Figura 2.**

24



**Figura 3.**



**Figura 4.**



RESUMO

“PROCESSO DE PRODUÇÃO DE PÓ DE MONÓXIDO DE NIÓBIO, MONÓXIDO DE NIÓBIO, E, CAPACITOR”

25

A presente invenção refere-se ao processo de produção de pó de monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ) de elevada pureza, elevada superfície específica, teores de oxigênio e nitrogênio controlados e morfologia apropriada para ser usada na fabricação de capacitores, caracterizado por duas etapas de redução do pentóxido de nióbio ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ), sendo a primeira etapa de redução por hidrogênio do pentóxido de nióbio ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) para dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ), e a segunda etapa de redução de dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) para monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ), através do uso de um material coletor de oxigênio numa atmosfera conveniente que permita a transferência dos átomos de oxigênio do dióxido de nióbio ( $\text{NbO}_2$ ) para o material coletor, sob condições adequadas de tempo e temperatura para a formação do monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ). As partículas de pó de monóxido de nióbio ( $\text{NbO}$ ) produzidas com o presente processo são de tamanho reduzido, têm elevada área superficial e morfologia apropriada, sendo adequadas para a produção de capacitores.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ **BLACK BORDERS**

☒ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☒ **FADED TEXT OR DRAWING**

☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**